

51

Int. Cl.:

C 07 c

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



52

Deutsche Kl.: 12 o, 17/03

10

11

Offenlegungsschrift 1903 117

21

Aktenzeichen: P 19 03 117.5

22

Anmeldetag: 22. Januar 1969

43

Offenlegungstag: 27. November 1969

Ausstellungspriorität: —

30

Unionspriorität

32

Datum: 23. Januar 1968

33

Land: Japan

31

Aktenzeichen: 3903-68

54

Bezeichnung: Verfahren zur Herstellung von Harnstoff

61

Zusatz zu: —

62

Ausscheidung aus: —

71

Anmelder: Sumitomo Chemical Company Ltd., Osaka (Japan)

Vertreter: Jung, Dr.; Vossius, Dr.; Coldewey, Dipl.-Ing.; Patentanwälte, 8000 München

72

Als Erfinder benannt: Yamagishi, Akio; Matsumoto, Genas; Niihama (Japan)

Benachrichtigung gemäß Art. 7 § 1 Abs. 2 Nr. 1 d. Ges. v. 4. 9. 1967 (BGBl. I S. 960):
Prüfungsantrag gemäß § 28 b PatG ist gestellt

DT 1903 117

© 11. 69 909 848/1383

9/120

LAUSING 044

BEST AVAILABLE COPY

1903117

8 MÜNCHEN 23 · SIEGESSTRASSE 28 · TELEFON 346087 · TELEGRAMM-ADRESSE: INVENT/MÜNCHEN

22. JAN. 1969

u.Z.: E 019 (Vo/kä)

POS - 16 627

SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LTD.,

Osaka, Japan

"Verfahren zur Herstellung von Harnstoff"

Priorität: 23. Januar 1968, Japan, Nr. 3903/68

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Harnstoff, das mit einem Verfahren zur Herstellung von Ammoniak verbunden ist.

Aus der japanischen Patentveröffentlichung Nr. 6332/1965 ist ein Verfahren zur Herstellung von Harnstoff bekannt, das mit einem Verfahren zur Herstellung von Ammoniak verbunden ist. Bei diesem Verfahren wird ein rohes Ammoniak-Synthesegas, das Kohlendioxyd enthält, mit flüssigem Ammoniak zusammengebracht, das mit einem Medium vermischt ist, das die Auflösung von Ammoniak unter dem Reaktionsdruck der Harnstoffsynthese fördert, und damit volle Menge an Kohlendioxyd absorbiert wird. Anschliessend wird die erhaltene Lösung auf eine Temperatur erhitzt, bei der sich Harnstoff bildet. Ferner ist aus der japanischen Patentveröffentlichung Nr. 3 291/67 eine Verbesserung des vorgenannten

909848/1383

POSTSCHECKKONTO: MÜNCHEN 50175 · BANKKONTO: DEUTSCHE BANK A.G. MÜNCHEN, LEOPOLDSTR. 71, KTO. NR. 9/574

BAD ORIGINAL

Verfahrens zur Herstellung von Harnstoff bekannt, bei dem man das in einem rohen Ammoniak-Synthesegas enthaltende Kohlendioxyd zur Absorption in eine wässrige Lösung einleitet, die Ammoniak und Kohlendioxyd enthält. Ferner ist aus der japanischen Patentveröffentlichung Nr. 12245/1967 ein verbessertes Verfahren bekannt, bei dem der Wärmegehalt des rohen Ammoniak-Synthesegases aus einem Gaserzeuger zur Zersetzung des Ammoniumcarbamats in der Produktlösung der Harnstoffsynthese ausgenutzt wird.

Bei den vorgenannten Verfahren ist es jedoch erforderlich, die Abtrennung des Kohlendioxyds aus dem rohen Ammoniak-Synthesegas in einem Hochdruck-Absorptionsturm unter einem Druck durchzuführen, der gleich dem Druck ist, unter dem die Harnstoffsynthese durchgeführt wird. Ausserdem wird bei der Harnstoffsynthese die Wiedergewinnung des nicht umgesetzten Ammoniaks und Kohlendioxyds in Mitteldruck- bzw. Niederdruck-Absorptionstürmen durchgeführt. Somit sind mindestens 3 verschiedene Arten von Absorptionstürmen erforderlich. Schliesslich ist es schwierig, die Absorptionswärme von Ammoniak und Kohlendioxyd als wirksame Wärmequelle auszunutzen, da die Mitteldruck- und Niederdruck-Absorptionstürme bei verhältnismässig niedrigen Temperaturen gehalten werden.

Aus der japanischen Patentveröffentlichung Nr. 26770/1967 ist ein Verfahren zur Wiedergewinnung des nicht umgesetzten Ammoniaks und Kohlendioxyds bei einem Verfahren zur Herstellung von Harnstoff beschrieben, bei dem die Produktlösung aus dem Harnstoff-Syntheseautoklav mit einem inerten Gas unter dem gleichen Druck zusammengebracht wird, bei dem die Harnstoffsynthese

909848/1383

BAD ORIGINAL

durchgeführt wird. Man erhält eine wässrige Harnstofflösung, die keine nicht umgesetzten Stoffe enthält. Die gleichzeitig abgetrennte gasförmige Komponente wird in einen Hochdruckabsorptionsturm eingeleitet, der bei etwa dem gleichen Druck gehalten wird, unter dem die Harnstoffsynthese durchgeführt wird. In diesem Turm wird die gasförmige Komponente durch eine Absorptionsflüssigkeit absorbiert. Gleichzeitig wird die erhaltene wässrige Lösung, die Ammoniak und Ammoniumcarbamat enthält, wieder in den Harnstoffsyntheseautoklav zurückgeführt, und das gleichzeitig abgetrennte Inertgas wird zur Wiederverwendung ^{in den} / Kreislauf geführt. Nach diesem Verfahren zur Wiedergewinnung des nicht umgesetzten Ammoniaks und Kohlendioxids wird die Absorptionsbehandlung unter etwa dem gleichen Druck durchgeführt, unter dem die Harnstoffsynthese durchgeführt wird. Das Verfahren gestattet nicht nur eine gute Ausnutzung und Wiedergewinnung der Wärme, sondern die erforderliche Menge an Absorptionsflüssigkeit kann verringert werden.

Aufgabe der Erfindung ist es, ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Harnstoff zur Verfügung zu stellen, bei dem das vorgenannte Harnstoffsyntheseverfahren mit einem Verfahren zur Herstellung von Ammoniak in solcher Weise kombiniert wird, dass das Ammoniak-Synthesegas als Inertgas benutzt wird.

Gegenstand der Erfindung ist somit ein Verfahren zur Herstellung von Harnstoff durch Umsetzung von Ammoniak mit Kohlendioxid bei Temperaturen von 160 bis 230°C und Drücken von 120 bis 400 kg/cm², das dadurch gekennzeichnet ist, dass man

909848/1383

BAD ORIGINAL

JANUARY 1950

- (a) eine wässrige Produktlösung, die Harnstoff, nicht umgesetztes Ammoniak und Kohlendioxyd enthält, aus einem Harnstoffsyntheseautoklav in einen Abstreifturm einleitet, der unter einem Druck steht, der um höchstens 50 kg/cm^2 niedriger ist, als der Druck im Harnstoffsyntheseautoklav,
- (b) die wässrige Produktlösung im Abstreifturm mit einem kohlendioxydfreien Ammoniak-Synthesegas zusammenbringt und in eine wässrige Harnstofflösung und ein Gasgemisch aus Ammoniak, Kohlendioxyd, Wasserdampf und Ammoniak-Synthesegas auftrennt,
- (c) das Gasgemisch mit einem Kohlendioxyd enthaltenden rohen Ammoniak-Synthesegas vermischt und
- (d) dieses Gemisch in einen Absorptionsturm einleitet, der unter einem Druck steht, der um höchstens 50 kg/cm^2 niedriger ist, als der Druck im Harnstoffsyntheseautoklav, und
- (e) dieses Gasgemisch im Absorptionsturm mit Wasser, wässriger Ammoniumcarbamatlösung, wässriger Harnstofflösung, einer wässrigen Harnstoffsyntheseproduktlösung oder flüssigem Ammoniak als Absorptionsflüssigkeit zusammenbringt und in eine wässrige, Ammoniak enthaltende Ammoniumcarbamatlösung und ein kohlendioxydfreies Ammoniak-Synthesegas auftrennt,
- (f) die wässrige, Ammoniak enthaltende Ammoniumcarbamatlösung wieder in den Harnstoffsyntheseautoklav zurückführt,
- (g) einen Teil des in Stufe (e) erhaltenen Ammoniak-Synthesegases in den in Stufe (b) verwendeten Abstreifturm zurückleitet und
- (h) den restlichen Teil des in Stufe (e) erhaltenen Ammoniak-Synthesegases zur Ammoniak-Synthese verwendet.

909848/1383

JANUARY 1958
BAD ORIGINAL

Das Verfahren der Erfindung gestattet es, die Absorption des in einem rohen Ammoniak-Synthesegas enthaltenen Kohlendioxyds und die Absorption des Ammoniaks und Kohlendioxyds, die von der Produktlösung der Harnstoffsynthese abgetrennt wurden, gleichzeitig in einem einzigen Absorptionsturm bei verhältnismässig hoher Temperatur und unter Ausnutzung der Bildungswärme als wirksame Wärmequelle für die anderen Verfahren durchzuführen.

Das rohe Ammoniak-Synthesegas, das Kohlendioxyd enthält, und das in Verfahren der Erfindung verwendet wird, leitet sich von dem Generatorgas und Wassergas ab, das die Komponenten zur Herstellung von Ammoniak enthält. Dieses Gas enthält zur Hauptsache Wasserstoff, Stickstoff, Kohlendioxyd und Kohlenmonoxyd. Voraussichtlich besteht das rohe Ammoniak-Synthesegas zur Hälfte, bezogen auf herzustellende Mole NH_3 , aus Kohlendioxyd. Bei zu grossem Gehalt an Kohlendioxyd kann man den Überschuss in an sich bekannter Weise abtrennen. Wenn Wasserstoff und Stickstoff im Überschuss vorliegen, was zur Bildung der mehr als doppelten Menge an Ammoniak, bezogen auf die Kohlendioxydmenge, führt, kann man den überschüssigen Ammoniak während der Ammoniaksynthese abtrennen.

Die Harnstoffsynthese wird durch Umsetzung von Ammoniak mit Kohlendioxyd in einem Autoklav bei Temperaturen von 160 bis 230°C und Drücken von 120 bis 400 kg/cm^2 durchgeführt. Die hierbei anfallende wässrige Produktlösung enthält Harnstoff, Ammoniak und Kohlendioxyd. Das Kohlendioxyd liegt in Form von Ammoniumcarbamat vor. Im allgemeinen enthält die Produktlösung überschüssiges Ammoniak, da Ammoniak zur Harnstoffsynthese im

909848/1383

BAD ORIGINAL

Überschuss über die äquivalente Menge Kohlendioxyd zugeführt wird. Nach dem Verfahren der Erfindung ist es möglich, die nicht umgesetzten Ausgangsverbindungen, d.h. Ammoniak und Kohlendioxyd bzw. Ammoniak und Ammoniumcarbamat, wiederzugewinnen und wieder in das Verfahren einzusetzen.

Als Abstreifturm kann eine Vorrichtung verwendet werden, wie sie im allgemeinen zur Destillation, zum Abstreifen oder zur Absorption verwendet wird, z.B. eine Füllkörperkolonne oder Bodenkolonne. Da jedoch der Temperaturabfall aufgrund der erforderlichen Wärme beträchtlich ist, muss der Turm mit einem Wärmeaustauscher versehen sein, damit die erforderliche Temperatur gehalten werden kann. Erfindungsgemäss wird in den Abstreifturm die Produktlösung aus der Harnstoffsynthese und gleichzeitig ein kohlendioxydfreies Ammoniak-Synthesegas eingeleitet. Vom Boden des Abstreifturms wird eine wässrige Harnstofflösung abgezogen, die 10 bis 90 Gew.-% Harnstoff enthält und praktisch frei von nicht umgesetztem Ammoniak und Kohlendioxyd ist. Das in der eingesetzten Produktlösung vorhandene Ammoniak und Kohlendioxyd wird gleichzeitig abgestreift. Dieses Gasgemisch enthält ausser Ammoniak und Kohlendioxyd Wasserdampf und Ammoniak-Synthesegas, d.h. Wasserstoff und Stickstoff.

Der Absorptionsturm kann ähnlich wie der Abstreifturm eine Destillations-, Abstreif- oder Absorptionskolonne sein. Als Absorptionsflüssigkeit wird erfindungsgemäss Wasser, eine wässrige Ammoniumcarbamatlösung, eine wässrige Harnstofflösung, eine wässrige Harnstoffsyntheseproduktlösung oder flüssiges Ammoniak verwendet. Ammoniak und Kohlendioxyd im Gasgemisch werden von der

909848/1383

BAD ORIGINAL

Absorptionsflüssigkeit unter einem geeigneten Druck und bei einer geeigneten Temperatur absorbiert. Wasser hat zwar eine verhältnismässig hohe Absorptionskraft, vorzugsweise werden jedoch allzugrosse Mengen Wasser vermieden, da das in die Harnstoffsynthese wieder zurückgeführte Wasser den Umsetzungsgrad von Ammoniak mit Kohlendioxyd verringert. Bei dem bekannten Verfahren wird die Absorption bei Drücken von höchstens 20 kg/cm^2 durchgeführt, und durch Verwendung verhältnismässig grosser Wassermengen wurde der Umsetzungsgrad bei der Harnstoffsynthese verringert. Im Verfahren der Erfindung wird dagegen die Absorption bei ähnlichem Druck durchgeführt, wie die Harnstoffsynthese, z. B. bei Drücken von 120 bis 400 kg/cm^2 . Deshalb ist es möglich, die Absorption unter Verwendung geringer Mengen an Wasser durchzuführen. Auf diese Weise wird der Umsetzungsgrad von Harnstoff nicht verringert. Die Absorptionswärme von Ammoniak und die Bildungswärme von Ammoniumcarbamat werden im allgemeinen durch einen am Absorptionsturm angebrachten Wärmeaustauscher entfernt und in Form von Wasserdampf wiedergewonnen.

Das vom Kopf des Absorptionsturmes abgezogene Gasgemisch wird als Ammoniak-Synthesegas verwendet. Es enthält praktisch kein Kohlendioxyd, jedoch eine geringe Menge, d.h. einige Prozent Ammoniak. Ein Teil des Ammoniak-Synthesegases wird in den Abstreifturm zurückgeführt, während der Rest des erhaltenen Ammoniak-Synthesegases zur Ammoniak-Synthese verwendet wird. Sowohl der Abstreifturm als auch der Absorptionsturm werden unter einem Druck gehalten, der um höchstens 50 kg/cm^2 niedriger ist, als der Druck im Harnstoffsyntheseautoklav.

909848/1383

BAD ORIGINAL

12. Juni 1969

DR. ELISABETH JUNG
DR. VÖLKER VOSSIUS
DIPL.-ING. G. COLDEWEY
PATENTANWÄLTE
München 23, Neumarkt 18
Telefon: 34 50 47

8

1903117

Eine bevorzugte Ausführungsform des Verfahrens der Erfindung wird nachstehend anhand des Fließschemas erläutert.

Ein Kohlendioxyd enthaltendes rohes Ammoniak-Synthesegas wird durch eine Leitung 1 in einen Kompressor 2 eingespeist und auf einen Druck von 120 bis 400 kg/cm² verdichtet. Das verdichtete Gas wird mit aus der Leitung 3 kondensiertem Ammoniak-Synthesegas vermischt, das Ammoniak und Kohlendioxyd enthält, und anschliessend durch die Leitung 4 in einen Absorptionsturm 5 eingeleitet. In den Kopf des Absorptionsturmes 5 wird durch eine Leitung 6 eine Absorptionsflüssigkeit eingespeist, die im Gegenstrom mit dem eingeleiteten Gas zusammengebracht wird, so dass praktisch das gesamte Kohlendioxyd und der überwiegende Teil des Ammoniaks von der Absorptionsflüssigkeit absorbiert werden. Die Temperatur des Bodenteils des Absorptionsturmes beträgt 130 bis 200°C. Der Hauptteil der Absorptionswärme wird mit Hilfe eines Kochers 10 in den Flüssigkeitskreis des Bodenabschnitts des Turmes abgeführt, der aus einer Leitung 7, der Pumpe 8, dem Kocher 10 und der Leitung 9 besteht. Das in den Kocher 10 in die Leitung 11 eingespeiste Wasser wird als Wasserdampf durch die Leitung 12 entnommen. Das Molverhältnis von Ammoniak zu Kohlendioxyd in der Flüssigkeit im Bodenteil des Turmes soll 2 : 1 oder mehr betragen. Durch Einleitung von Ammoniak durch eine Leitung 31 kann dieses Molverhältnis auf einen geeigneten Wert eingestellt werden. Ein Teil der im Kreislauf geführten Flüssigkeit des Absorptionsturmes wird durch die Leitung 13 abgezogen und zusammen mit dem Ammoniak, der durch eine Leitung 33 aus dem Ammoniak-Herstellungsverfahren abgezogen wird, in einen Harnstoffsyntheseautoklav 14 eingespeist, der bei etwa dem gleichen

909848/1383

BAD ORIGINAL

Druck gehalten wird, wie er im Absorptionsturm herrscht, nämlich bei einem Druck von 120 bis 400 kg/cm², und bei einer Temperatur von 160 bis 230°C. Die erhaltene wässrige Produktlösung enthält neben Harnstoff überschüssigen Ammoniak und nicht umgesetztes Ammoniumcarbamat. Diese Lösung wird unter etwa dem gleichen Druck, wie er im Autoklav herrscht, durch die Leitung 16 in einen Abstreifturm 17 eingeleitet. Im Abstreifturm 17 wird die Lösung im Gegenstrom mit dem kohlendioxidfreien und praktisch kein Ammoniak enthaltenden Ammoniak-Synthesegas zusammengebracht, wobei die Temperatur mit Hilfe von Wärmeaustauschern, die an dem Turm 17 angeordnet sind, bei 80 bis 230°C gehalten wird. Das kohlendioxidfreie Ammoniak-Synthesegas wird von dem Absorptionsturm 5 abgezogen und in den Abstreifturm 17 durch die Leitung 18 eingeleitet. Auf diese Weise wird die Harnstoffproduktlösung von Ammoniak und Kohlendioxid befreit. Vorsugsweise verwendet man in dieser Stufe (b) die 0,1- bis 10-fache Menge an Ammoniak-Synthesegas, bezogen auf die Mole der Gesamtmenge an dem abgestreift nicht umgesetzten Ammoniak, nicht umgesetzten Kohlendioxid und Wasserdampf. Durch die Leitung 19 wird eine wässrige Harnstofflösung abgezogen, die praktisch keine nicht umgesetzten Ausgangsverbindungen enthält, während durch die Leitung 20 ein Gasgemisch aus Ammoniak, Kohlendioxid, Wasserdampf, Wasserstoff und Stickstoff abgezogen wird. Die durch die Leitung 19 abgezogene wässrige Harnstofflösung wird gegebenenfalls einer Behandlung unter vermindertem Druck unterzogen, um nicht umgesetzte Ausgangsverbindungen vollständig abzutrennen, während Harnstoff aus der Lösung in üblicher Weise abgetrennt, getrocknet und z.B. verprillt wird. Das durch die Leitung 20 abgezogene

*entwässert
gemischt
16.11.59*

909848/1383

BAD ORIGINAL

ne Gasgemisch ist ein Ammoniak-Synthesegas, das Ammoniak und Kohlendioxyd enthält, und das mit Hilfe einer Pumpe 21 und durch die Leitung 3 in den Absorptionsturm 5 zusammen mit dem rohen, Kohlendioxyd enthaltenden Ammoniak-Synthesegas zurückgeführt wird. Das aus dem Absorptionsturm 5 abgetrennte Gas ist ein Ammoniak-Synthesegas, das praktisch kein Kohlendioxyd, jedoch bisweilen eine geringe Menge Ammoniak enthält. Dieses Gas wird durch eine Leitung 22 abgezogen und gegebenenfalls abgekühlt und gewaschen. Hierdurch wird Ammoniak aus dem Gasgemisch vollständig abgetrennt. Ein Teil des Gasgemisches wird durch die Leitung 18 wieder in den Abstreifturm 17 zurückgeführt. Der Rest des Gases wird nach Abtrennung von Kohlenmonoxyd durch eine Leitung 23 zur Ammoniaksynthese verwendet. Dieses Gas trifft bei der Leitung 25 mit dem kreisenden Gas des Ammoniaksynthesereaktors zusammen und gelangt hierauf durch eine Leitung 24 in den Ammoniaksynthesereaktor 26. Die aus dem Ammoniaksynthesereaktor 26 austretenden Gase werden durch eine Leitung 27 in einen Kühler 28 eingeleitet, in welchem der Ammoniak verflüssigt und durch eine Leitung 29 in einen Abscheider 30 eingeleitet wird. In dem Abscheider 30 werden die Gase vom flüssigen Ammoniak abgetrennt. Die abgetrennten Gase werden durch die Leitung 25 zurückgeführt, während der flüssige Ammoniak durch eine Leitung 15 abgezogen wird. Ein Teil oder sämtlicher flüssiger Ammoniak wird durch eine Leitung 31 in den Absorptionsturm 5 eingeleitet. Der restliche Teil des flüssigen Ammoniaks wird durch eine Leitung 33 in den Harnstoffsyntheseautoklav 14 eingespeist. Bei Gegenwart von überschüssigem Ammoniak wird dieser aus dem System durch eine Leitung 32 abgezogen. Die Ammoniaksynthese

909848/1383

BAD ORIGINAL

wird in an sich bekannter Weise bei Drücken von 100 bis 500 kg/cm² und bei Temperaturen von 200 bis 600°C durchgeführt. Wenn die Ammoniaksynthese bei einem anderen Druck durchgeführt wird, als die Harnstoffsynthese, muss man den Druck an der Verbindungsstelle beider Systeme mit Hilfe eines Kompressors oder eines Redusierventils ändern.

Aus dem vorstehenden ist ersichtlich, dass nach dem Verfahren der Erfindung zur Herstellung von Harnstoff die nicht ungesetzten Verbindungen in der Harnstoffproduktlösung mit Hilfe des kohlendioxidfreien Ammoniak-Synthesegases abgetrennt werden, das praktisch keinen Ammoniak enthält. Man erhält hierbei eine wässrige Harnstofflösung, die praktisch keine nicht ungesetzten Ausgangsverbindungen enthält. Das gleichzeitig abgetrennte, Kohlendioxid und Ammoniak enthaltende Ammoniak-Synthesegas wird mit dem rohen Ammoniak-Synthesegas vermischt, das Kohlendioxid enthält, und aus dem erhaltenen Gasgemisch wird in einem Absorptionsturm das Kohlendioxid sowie die Hauptmenge an Ammoniak abgetrennt. Auf diese Weise kann die Absorption von Kohlendioxid im Verfahren zur Herstellung von Ammoniak und die Absorption von Ammoniak und Kohlendioxid im Verfahren zur Herstellung von Harnstoff gleichzeitig in einem einzigen Absorptionsturm durchgeführt werden. Bei dem bekannten Verfahren musste dagegen die Absorption in getrennten Absorptionsmedien durchgeführt werden. Im erfindungsgemässen Verfahren ist damit die Vorrichtung wesentlich vereinfacht. Da der Absorptionsturm unter praktisch dem gleichen Druck betrieben wird, wie die Harnstoffsynthese, wird die Absorptionswärme bei verhältnismässig hoher Temperatur frei, nämlich bei Temperaturen von 130 bis 180°C,

909848/1383

BAD ORIGINAL
JAN 1977 CAR

wodurch die Wärme wirkungsvoll ausgenutzt und wiedergewonnen werden kann. Da überdies eine geringe Menge an Absorptionsflüssigkeit zur Absorption ausreicht, kann die Menge an Wasser, die in das Verfahren zur Herstellung von Harnstoff eingeführt wird, beträchtlich verringert werden. Da alle Systeme unter praktisch dem gleichen Druck betrieben werden, kann ferner die Kraft für den Kompressor verringert werden. Ausserdem ist es nicht erforderlich, eine Pumpe für die Ammoniumcarbamatlösung zu verwenden, wie es bei den herkömmlichen Verfahren zur Herstellung von Harnstoff erforderlich ist. Auf diese Weise werden Schwierigkeiten in Zusammenhang mit den Maschinen beträchtlich verringert.

Das Beispiel erläutert die Erfindung.

Beispiel

Durch die Leitung 1 wird in einer Menge von 1,744 Mol/Stunde ein Ammoniak-Synthesegas eingeleitet, das 59,7 % Wasserstoff, 19,9 % Stickstoff, 19,9 % Kohlendioxyd und 0,5 % Kohlenmonoxyd enthält. Das Gas wird mit Hilfe des Kompressors 2 auf 220 kg/cm² verdichtet und anschliessend mit einem Ausgangsgas in einer Menge von 3,882 Mol/Stunde vermischt, das durch die Leitung 3 aus dem Abstreifturm zugeführt wird. Dieses Gas besteht aus 37,5 % Wasserstoff, 12,5 % Stickstoff, 42,1 % Ammoniak, 6,4 % Kohlendioxyd und 1,5 % Wasserdampf. Das Gasgemisch wird in den Bodenteil des Absorptionsturmes 5 eingespeist. In den Kopfteil des Absorptionsturmes wird in einer Menge von 13,5 kg/Stunde eine wässrige Harnstofflösung eingespeist, die 76,9 Gew.-% Harnstoff enthält. Der Bodenteil des Absorptionsturmes wird bei einer Temperatur von 150°C und der Kopfteil bei einer Temperatur von

909848/1383

BAD ORIGINAL

70°C gehalten. Die aus dem Kopfteil des Absorptionsturmes abströmenden Gase enthalten 1 % Ammoniak und 0 % Kohlendioxyd. Ein Teil der aus dem Kopfteil des Absorptionsturmes abschäumenden Gase, entsprechend einer Menge von 1,950 Mol/Stunde, wird durch die Leitung 18 in den Bodenteil des Abstreifturmes 17 eingespeist, während der Rest in einer Menge von 1400 Mol/Stunde zur Ammoniaksynthese verwendet wird.

Die Flüssigkeit im Bodenteil des Absorptionsturmes 5 wird durch die Leitung 13 in den Harnstoffsyntheseautoklav eingeleitet, und mit Ammoniak, der in einer Menge von 694 Mol/Stunde zugeführt wird, aus der Ammoniaksynthese bei einem Druck von 200 kg/cm², einer Temperatur von 180°C und einem Ammoniaküberschussverhältnis von 75 % zur Umsetzung gebracht. Hierbei entsteht in einer Menge von 80,2 kg/Stunde eine Produktlösung, die 38,9 Gew.-% Harnstoff, 34,7 Gew.-% Ammoniak, 13,4 Gew.-% Kohlendioxyd und 13,0 Gew.-% Wasser enthält. Diese Produktlösung wird in den Abstreifturm eingespeist, der bei einem Druck von 195 kg/cm² gehalten wird. Aus dem Abstreifturm werden nicht umgesetzte Verbindungen mit Hilfe des durch die Leitung 18 eingeleiteten Gases abgetrennt, wobei die Temperatur im Kopfteil des Turmes bei 180°C und im Bodenteil bei 120°C gehalten wird. Vom Boden des Abstreifturmes wird in einer Menge von 41 kg/Stunde eine Lösung aus 0,5 Gew.-% Ammoniak, 0,5 Gew.-% Kohlendioxyd, 76,4 Gew.-% Harnstoff und 22,6 Gew.-% Wasser abgezogen.

909848/1383

BAD ORIGINAL

Patentansprüche

1) Verfahren zur Herstellung von Harnstoff durch Umsetzung von Ammoniak mit Kohlendioxyd bei Temperaturen von 160 bis 230°C und Drücken von 120 bis 400 kg/cm², dadurch gekennzeichnet, dass man

- (a) eine wässrige Produktlösung, die Harnstoff, nicht ungesetztes Ammoniak und Kohlendioxyd enthält, aus einem Harnstoffsyntheseautoklav in einen Abstreifturm einleitet, der unter einem Druck steht, der um höchstens 50 kg/cm² niedriger ist, als der Druck im Harnstoffsyntheseautoklav,
- (b) die wässrige Produktlösung im Abstreifturm mit einem kohlendioxydfreien Ammoniak-Synthesegas zusammenbringt und in eine wässrige Harnstofflösung und ein Gasgemisch aus Ammoniak, Kohlendioxyd, Wasserdampf und Ammoniak-Synthesegas auftrennt,
- (c) das Gasgemisch mit einem Kohlendioxyd enthaltenden rohen Ammoniak-Synthesegas vermischt und
- (d) dieses Gemisch in einem Absorptionsturm einleitet, der unter einem Druck steht, der um höchstens 50 kg/cm² niedriger ist, als der Druck im Harnstoffsyntheseautoklav, und
- (e) dieses Gasgemisch im Absorptionsturm mit Wasser, wässriger Ammoniumcarbamatlösung, wässriger Harnstofflösung, einer wässrigen Harnstoffsyntheseproduktlösung oder flüssigem Ammoniak als Absorptionsflüssigkeit zusammenbringt und in eine wässrige, Ammoniak enthaltende Ammoniumcarbamatlösung und ein kohlendioxydfreies Ammoniak-Synthesegas auftrennt,
- (f) die wässrige, Ammoniak enthaltende Ammoniumcarbamatlösung wieder in den Harnstoffsyntheseautoklav zurückführt,

909848/1383

BAD ORIGINAL

- (g) einen Teil des in Stufe (e) erhaltenen Ammoniak-Synthesegases in den in Stufe (b) verwendeten Abstreifturm zurückklettet und
- (h) den restlichen Teil des in Stufe (e) erhaltenen Ammoniak-Synthesegases zur Ammoniak-Synthese verwendet.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man ein Kohlendioxyd enthaltendes rohes Ammoniak-Synthesegas verwendet, das zur Hälfte, bezogen auf herzustellende Mole NH_3 , aus Kohlendioxyd besteht.

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man in Stufe (b) die 0,1- bis 10-fache Menge an Ammoniak-Synthesegas, bezogen auf die Mole der Gesamtmenge an nicht umgesetztem Ammoniak, nicht umgesetztem Kohlendioxyd und Wasserdampf, verwendet.

909848/1383

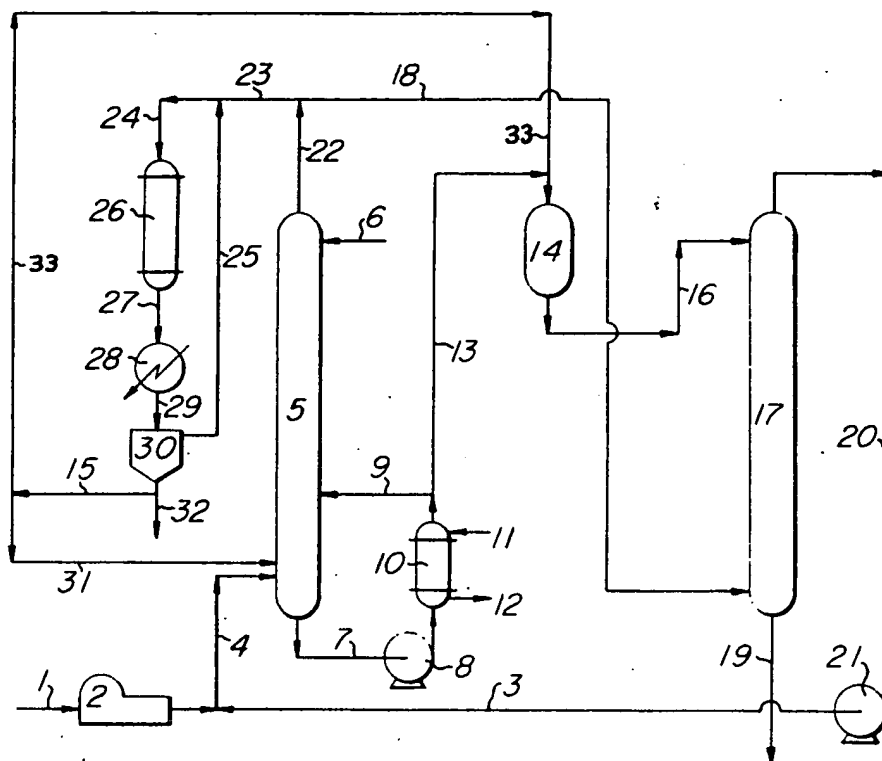
BAD:ORIGINAL

16
Leerseite

- 17 -

1903117

120 17-03 19 03 117 O.T: 27.11.1969



909848/1383

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.